

相転移を示す成長モデル*

静岡大学 工業短期大学部 長谷 隆

(1989年5月 受付)

1. 緒言

Witten and Sander (1981) による「拡散に支配された凝集 (DLA) モデル」の提案以来、多くの研究者たちが計算機シミュレーション、実験、理論によって凝集体のフラクタル構造を研究してきた。表面張力、ドリフト、境界条件などが凝集体の構造にどのような変化をもたらすかなどが調べられてきた。Meakin (1983) は DLA に及ぼす吸引的ドリフトの効果を調べ、DLA フラクタルから密な凝集体へのクロスオーバー現象 (異なった構造体への移行) を見出した。吸引的ドリフトの増加に伴ってクロスオーバーの距離 (中心から DLA フラクタルと密な凝集体との境界までの長さ) が短くなる。

本詳解では、吸引的ドリフトを反発的ドリフトの領域まで拡張した DLA モデル (Nagatani (1989a)) を紹介する。吸引的及び反発的ドリフトを拡散場に導入することによって、DLA の構造がどのように変化するかを調べる。ドリフトの方向によって異なる構造をもつ凝集体が現われる。吸引的ドリフトの場合、密な構造が、反発的ドリフトの場合、一次元的な針状構造が形成される。ドリフトを吸引から反発に変化させることによって、凝集体は密な構造から針状構造に構造的な転移を起す。この構造相転移は臨界現象・相転移と強い類似性をもつ。クロスオーバーの距離 (DLA フラクタルと密な凝集体、あるいは針状構造体との境界までの長さ) はドリフトがゼロに近づくに従って発散する。ドリフトなしのとき、スケール不変性をもつ DLA フラクタルが出現する。このようにして、拡散場にドリフトを導入することによって相転移を示す成長モデルをつくることができ、DLA フラクタルは相転移臨界現象として記述できる可能性をもつ (Nagatani (1987, 1988a, 1988b))。

また、この構造相転移が流体力学的不安定性と関連しているかどうかを調べる (Nagatani (1989b, 1989c))。Paterson (1984) は DLA 構造の出現を流体力学的不安定である Saffman-Taylor 不安定 (1958) と関連づけ、凝集体が縮小から成長に変わるとき、平らで安定な界面が不安定で不規則な界面になることをシミュレーション実験で示した。ここでは、Saffman-Taylor の線型安定性理論を拡張して、ドリフトを伴う拡散場において形成される平らな界面の安定性を調べる。

2. モデルとシミュレーション

ドリフトをもつ拡散場を考える。まず初めに正方格子の中心に種粒子をおき、中心に向うドリフト P を受けるブラウン粒子を考える。ドリフト P は次式で定義する。

* 本稿は、統計数理研究所 共同研究 (63-共会-51) における発表に基づくものである。

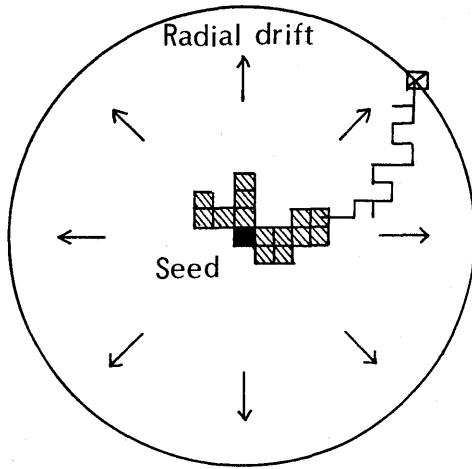


図1. 半径方向にドリフトを受ける拡散に支配された凝集体のシミュレーションモデル. 中心に種粒子をおく.

$$P \equiv \frac{\left(\frac{u}{D}\right)}{1 + \left(\frac{u}{D}\right)},$$

ここで u は半径方向の粒子速度, D は拡散係数を表わす. ドリフト P を受けるブラウン粒子は確率 $(1-P)/4$ で正方格子上の各方向へランダムなブラウン運動を行なう. 格子間隔を1として, 中心より半径300の所から中心に向う吸引的ドリフト $P (< 0)$ を受けるブラウン粒子を出発させる. この粒子が種粒子のとなりきたとき, 附着させる. この過程をくりかえすことによって, 吸引的ドリフトをもつ場合のクラスター形成が実現できる. 一方, 反発的ドリフトの場合, 吸引的ドリフトを逆にして中心から半径方向に遠ざかるようにドリフトを与える. 図1に反発的ドリフトの場合のシミュレーションモデルを示す. 反発的ドリフトの場合, 粒子は確率 P で中心から遠ざかるようにドリフトを受けるブラウン運動を行なう. このようにして得られたクラスターパターンの代表例を図2に示す. 図2(a)はドリフトなしのDLAクラスターを示す. 図2(b), (c), (d), (e)はそれぞれ $P=0.005, 0.009, 0.016, 0.018$ の場合のクラスターを示す. 非常に弱い反発的ドリフトによってもクラスターパターンは大きく変化する. 反発的ドリフトを強めるに従って, DLAフラクタルは一次元的な針状構造へと変化していく. こういうクラスターの構造変化が単なるフラクタル次元の連続的変化であるか, またはある特徴的な長さの所でDLAフラクタルから別のノンフラクタル構造へのクロスオーバーであるかを調べるために, 図3にクラスターを構成する粒子数と半径との関係を示す. 図中のa, b, ..., eの曲線は, それぞれ図2の(a), (b), ..., (e)に対応する. ある特徴的な半径の所で曲線の傾きが1.67から1へ変わることがわかる. すなわち, ある特徴的な長さ(クロスオーバー長)の所でクラスターの内部構造がDLAフラクタルから一次元構造へとクロスオーバーしているのである. 反発的ドリフトを強めるに従って, DLAフラクタルから針状構造へのクロスオーバー長が短くなっていく. 図4に吸引的ドリフトによって得られたパターンを示す. 図4(a), (b), (c)はそれぞれ $P=-0.1, -0.2, -0.6$ の場合を示す. 吸引的ドリフトによってDLAフラクタルは密な凝集体となる. DLAフラクタルから密な凝集体へのクロスオーバーは, すでにMeakin(1983)によってシミュレーションがなされた. 吸引的ドリフトを導入することによって, クラスター内部の構造がある特徴的な長さ(クロスオーバー長)の所でDLAフラクタルから密な凝集体に移行すること(クロスオーバー現象)が見出された. 吸引的ドリフトを強めるに従って

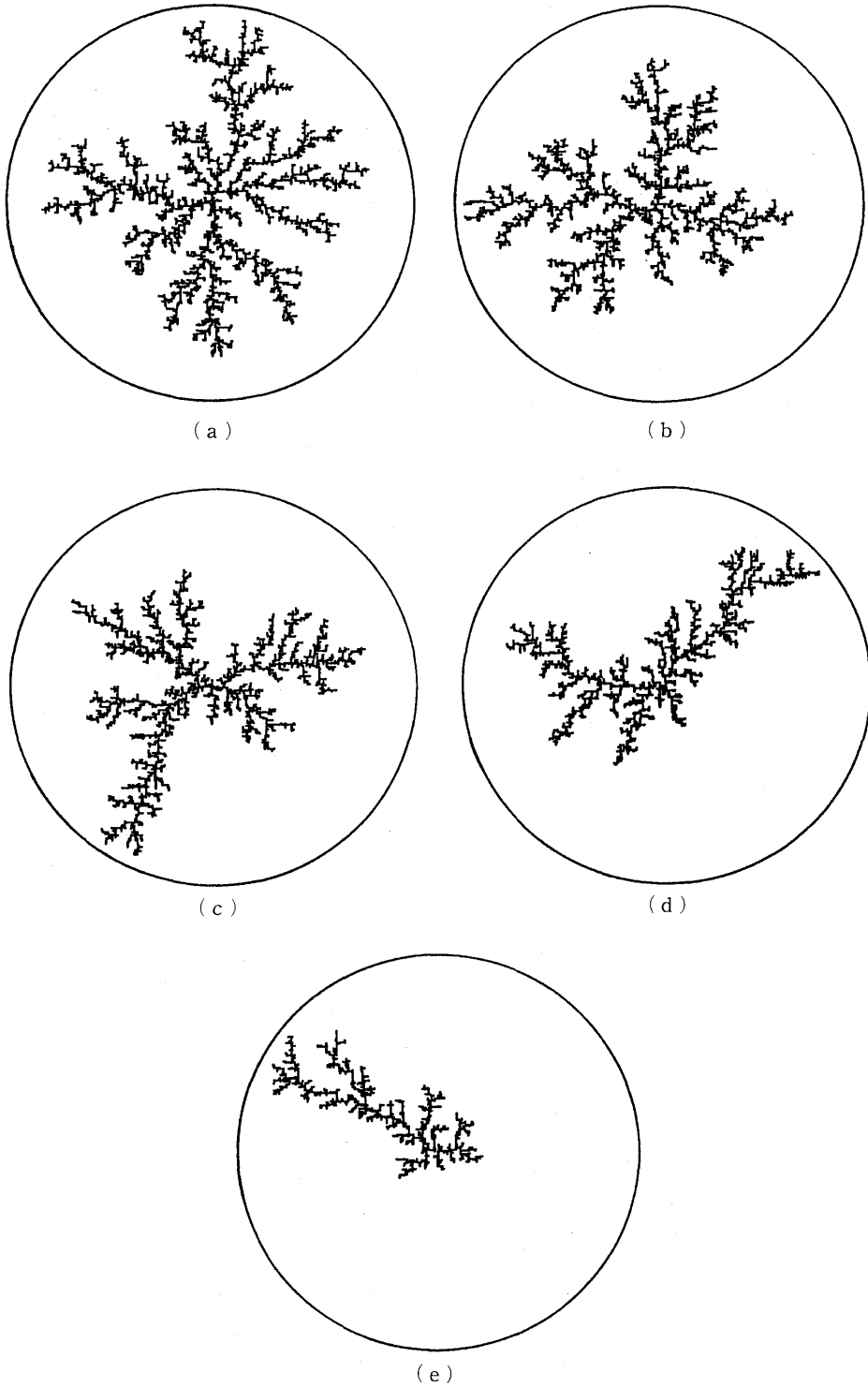


図2. 反発的ドリフトのシミュレーションの結果. (a) $P=0$, DLA フラクタル, (b) $P=0.005$, (c) $P=0.009$, (d) $P=0.016$, (e) $P=0.018$.

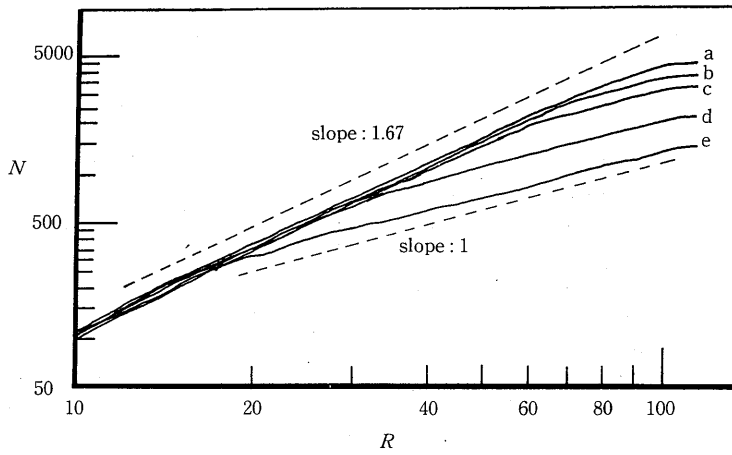


図3. クラスタ内の粒子数 N と半径 R との関係を log-log で示す. 図中の a, b, ..., e は図2の (a), (b), ..., (e) に対応する.

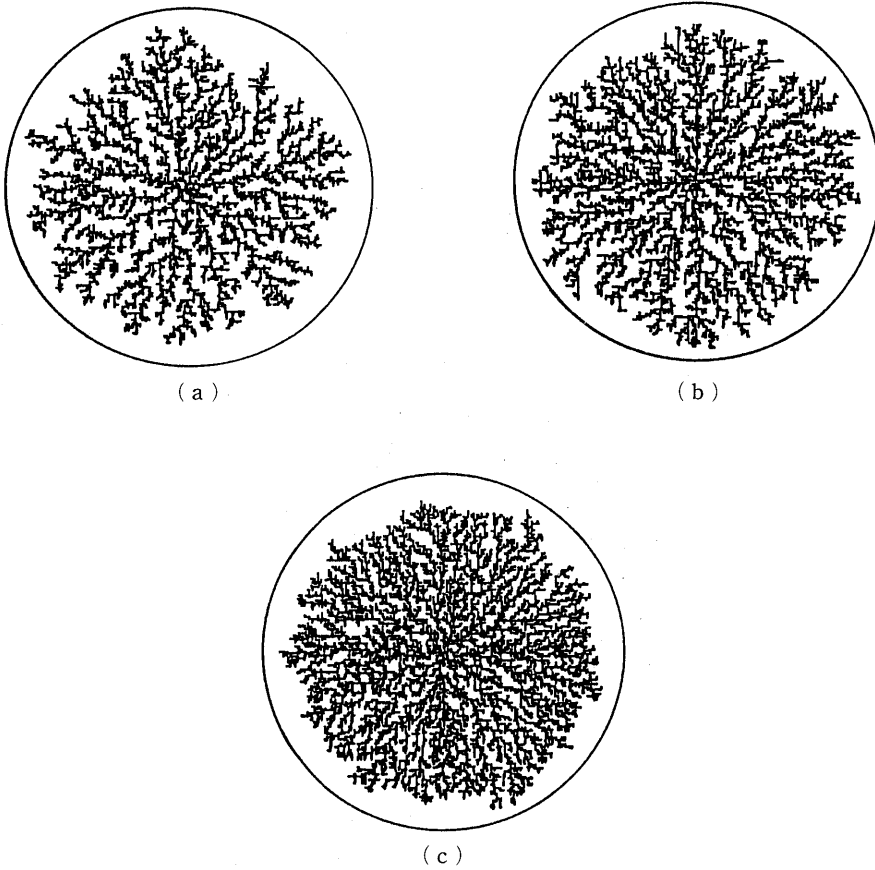


図4. 吸引的ドリフトのシミュレーションの結果. (a) $P = -0.1$, (b) $P = -0.2$, (c) $P = -0.6$.

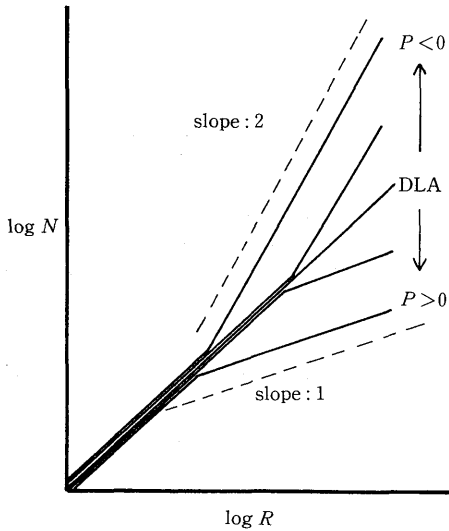


図5. クラスタ内の粒子数 N と半径 R との関係
を概略的に示す。ドリフトが吸引から反発に
変わるとき、傾きが2から1に変わる。

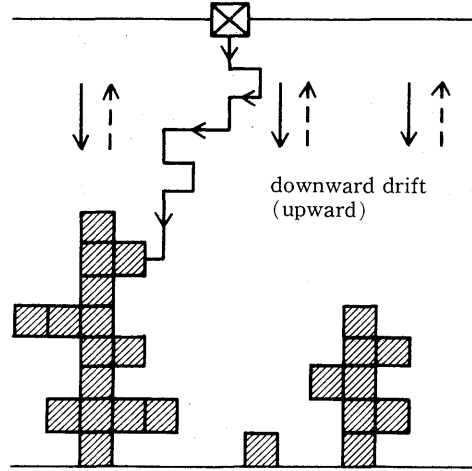


図6. 平板上でのドリフトを受けるDLAのシミュ
レーションモデル。

て、DLA フラクタルから密な凝集体へのクロスオーバー長は短くなる。吸引的ドリフトの場合、 P の強さを大きくできるが、反発的ドリフトの場合 P の強さをシミュレーションにおいて大きくすることは困難である。これは、反発的ドリフトの場合、ほとんどのブラウン粒子が境界から出ていき、大きなクラスターを成長させるには大変な計算時間がかかるためである。

このようにしてドリフトを吸引から反発に変化させると、クラスターパターンは密な凝集体から一次元的な針状構造へと形態的な相転移を起す。ドリフトなしのとき、スケール不変性をもつDLA フラクタルが出現する。図5に概略的にクラスター内の粒子数 N と半径 R との関係を示す。ドリフトをゼロに近づけるに従って、クロスオーバー長が長くなり、ゼロドリフトで発散する。このシステムにおける特徴的長さはクロスオーバー長のみである。このクロスオーバー長である特徴的長さがゼロドリフトで発散するので、このシステムにおける形態転移は相転移・臨界現象とみなすことができ、スケール不変性をもつDLA フラクタルが臨界点として出現する。

次に平板上でのドリフトを受ける拡散粒子による凝集過程のシミュレーションを行なう。図6に示すように、 200×200 の正方格子を考える。正方格子の下に平板を置き、上から平板に垂直方向にドリフトを受けるブラウン粒子を導入する。ブラウン粒子が平板上に到達したら、粒子を付着させ、新しい粒子を上から導入する。このプロセスをくりかえして凝集体を作製する。図7にシミュレーション結果を示す。ドリフトの値はそれぞれ (a) $P = -0.1$, (b) $P = -0.05$, (c) $P = 0$, (d) $P = 0.002$, (e) $P = 0.008$ である。吸引的ドリフトの場合、密な凝集体が、反発的ドリフトの場合、針状構造体が出現する。

3. 流体力学的不安定性

ドリフトの方向転換による構造相転移を流体力学的不安定性(Saffman-Taylor 不安定性)としてとらえることができるかどうか調べる(Nagatani (1989c)). Paterson (1984) はDLA 構

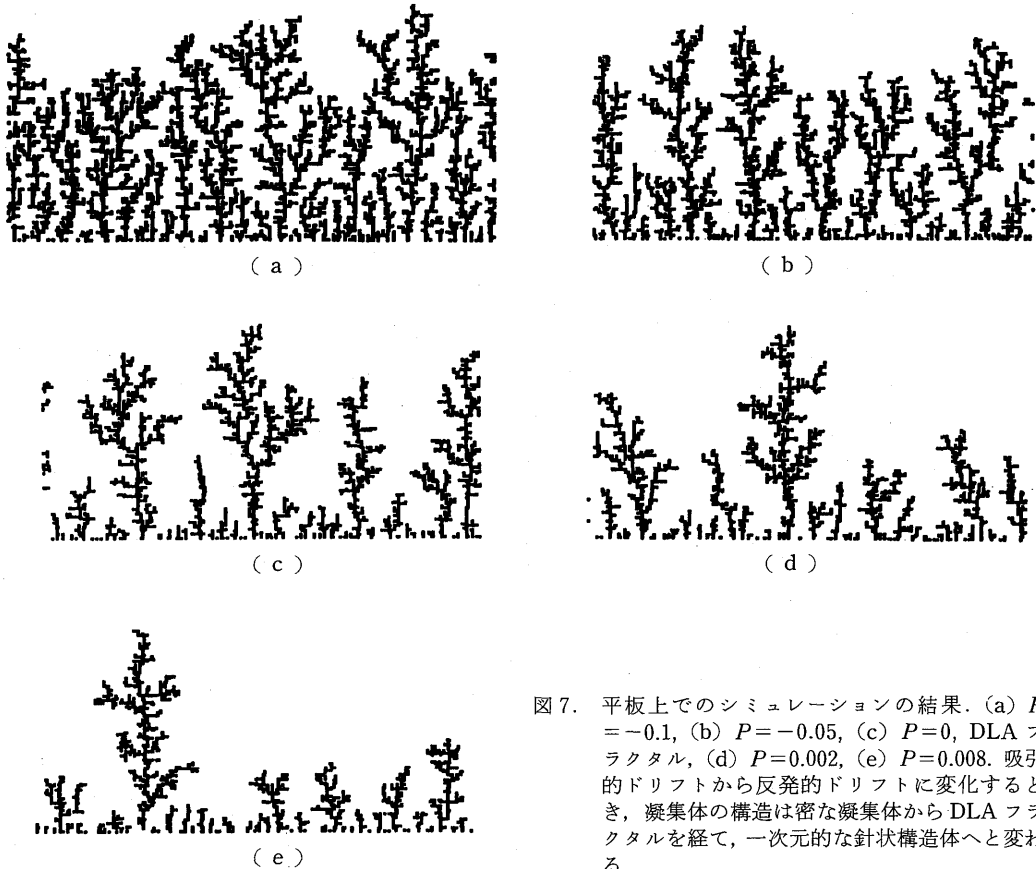


図7. 平板上でのシミュレーションの結果. (a) $P = -0.1$, (b) $P = -0.05$, (c) $P = 0$, DLA フラクタル, (d) $P = 0.002$, (e) $P = 0.008$. 吸引的ドリフトから反発的ドリフトに変化するとき, 凝集体の構造は密な凝集体からDLAフラクタルを経て, 一次元的な針状構造体へと変わる.

造の出現を流体力学的不安定である Saffman-Taylor 不安定 (1958) と関連づけ, 凝集体が縮小から成長が変わるとき, 平らな安定した界面が不安定で不規則な界面になることをシミュレーション実験で示した. ここでは, Saffman-Taylor の線型安定性理論を拡張して, ドリフトを伴う拡散場において形成される平らな界面の安定性を調べる. 図8にモデルを示す. 準定常近似でドリフトを伴う拡散場は次式によって表わされる.

$$(3.1) \quad u \frac{\partial C}{\partial x} = D \nabla^2 C$$

ここで u は x 方向の速度である. 濃度についての境界条件は, 界面で飽和濃度 C_s に等しい.

$$(3.2) \quad C = C_s.$$

界面が一定速度 V で進む場合を考える. 界面上での質量保存より次式が成立する.

$$(3.3) \quad uC - D \frac{\partial C}{\partial x} = -C_a V.$$

ここで, C_a は凝集体の濃度である. 界面が $x = \delta(t) \cos(my)$ と変形したと仮定する. $\delta(t)$ は変形した界面の振幅で, 時間 t の関数である. このとき (3.1) 式の解は次式によって与えら

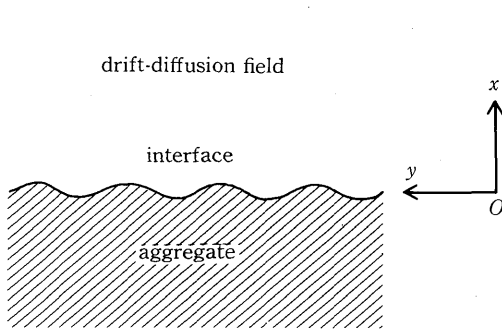


図8. 流体力学的不安定性を調べるための弱い変形を受けた平らな界面を示す。

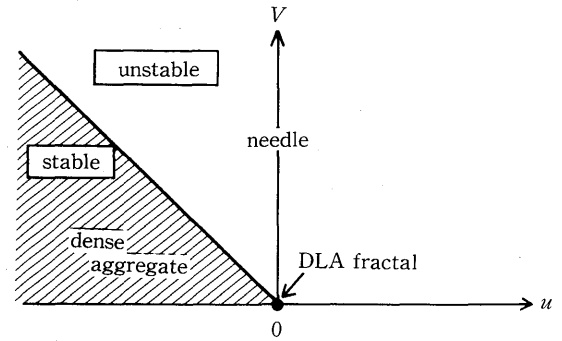


図9. 形態図と流体力学的不安定性との関係を示す。dense aggregate (密な凝集体), needle (針状構造体), DLA fractal (拡散に支配された凝集体のフラクタル)。

れる。

$$(3.4) \quad C = \left(C_s + \frac{C_s V}{u} \right) e^{(u/D)x} - \frac{C_a V}{u} - \frac{C_a}{D \left(1 + \frac{u}{aD} \right)} \left(\frac{\delta}{a} \right) \cos(my) e^{-ax},$$

ここで

$$a = \frac{\left(-\frac{u}{D} + \sqrt{\left(\frac{u}{D} \right)^2 + 4m^2} \right)}{2}.$$

δ の一次の項まで考慮して, $C = C_s$ とおくと, 次式を得る。

$$(3.5) \quad \frac{\delta}{\delta} = \left(a + \frac{u}{D} \right) \left(\frac{C_s u}{C_a} + V \right).$$

$u=0$ の極限で, (3.5) 式は Saffman-Taylor の結果に一致する。ここで, u の符号によらず $(a + u/D) > 0$ 。もし $(C_s u / C_a + V) > 0$ ならば界面は不安定となり, $(C_s u / C_a + V) < 0$ ならば界面は安定となる。従って, 負のドリフト (界面に向うドリフト) の強さ $|u|$ が $C_a V / C_s$ より大きくなったとき, 界面は安定になる。 $V \rightarrow 0$ の極限で, ドリフト u が正から負に変わるとき界面は安定化される。従って, ドリフトの方向転換による構造相転移の転移線は流体力学的不安定性の中立線と一致する。図9に流体力学的不安定性の中立線とクラスターパターンの形態との関係を示す。

上で調べた流体力学的不安定性と重力場中での粘性脂の安定性は非常に密接な類似性を示す。非常に高い粘度をもつ流体中に, 非常に低い粘度をもつ流体を注入すると, 次の条件を満たすとき, 界面は安定化される。

$$(3.6) \quad \left(\frac{k_1}{\mu_1} \right) (\rho_2 - \rho_1) g - V > 0.$$

ここで, k_1, μ_1 はそれぞれ排除流体の透過率と粘性を表わし, ρ_2 は侵入流体の密度である。従って, 重力による界面を安定化する力が, 圧力による界面を不安定化する力に勝ったとき, 界面は安定になる。ドリフトを伴う拡散場での平らな界面の安定性の条件は次式で与えられる。

$$(3.7) \quad \frac{C_s}{C_a} u + V > 0 .$$

吸引的なドリフトの強さが $(C_a/C_s) V$ より大きくなったとき、界面は安定になる。(3.6)式と(3.7)式を比較すると、ドリフトを伴うDLAと重力場中での粘性脂とは密接な関係をもつことがわかる。ここで見出された構造相転移を示すDLAモデルは、重力場中での粘性脂の実験によって実現できると考えられる。

参 考 文 献

- Meakin, P. (1983). Effects of particle drift on diffusion-limited aggregation, *Phys. Rev. A*, **28**, 5221-5224.
- Nagatani, T. (1987). Renormalization-group approach to multifractal structure of growth probability distribution in diffusion-limited aggregation, *Phys. Rev. A*, **36**, 5812-5819.
- Nagatani, T. (1988a). Multifractal structures of mass and growth probability distributions in diffusion-limited aggregation on hierarchical lattices, *Phys. Rev. A*, **38**, 2632-2640.
- Nagatani, T. (1988b). Convection effect on the diffusion-limited-aggregation fractal, *Phys. Rev. A*, **37**, 4461-4468.
- Nagatani, T. (1989a). Growth model with phase transition, *Phys. Rev. A*, **39**, 438-441.
- Nagatani, T. (1989b). Stabilization of long-wavelength mode on interface in electrodeposition, *Phys. Rev. A*, **40**, 2154-2158.
- Nagatani, T. (1989c). Hydrodynamic instability and structural phase transition in diffusion-limited aggregation with drift, *Phys. Rev. A*, **40**, 5351-5355.
- Paterson, L. (1984). Diffusion-limited aggregation and two-fluid displacements in porous media, *Phys. Rev. Lett.*, **52**, 1621-1624.
- Saffman, P.G. and Taylor, S.G. (1958). The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid, *Proc. Roy. Soc. London Ser. A*, **245**, 312-329.
- Witten, T.A. and Sander, L.M. (1981). Diffusion-limited aggregation, *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 1400-1403.

Growth Model with Phase Transition

Takashi Nagatani

(College of Engineering, Shizuoka University)

A growth model is presented to show a structural phase transition. The drift-diffusion-limited aggregation model with a positive drift proposed by Meakin (1983) is extended to that with a negative drift. When the drift changes from a positive value to a negative value, the structure of the aggregate varies from a dense structure, through the diffusion-limited aggregation (DLA) fractal, to a needlelike structure. In contrast with the crossover from the DLA fractal to the dense structure at a positive drift, at a negative drift the crossover is shown from the fractal structure at short length scales to a one-dimensional structure at longer length scales. A question of whether or not the structural phase transition is related to a hydrodynamic instability is studied. It is shown that the transition line of the structural phase transition is consistent with the marginal line of the hydrodynamic instability. Similarity to viscous fingering under a gravitational field is discussed.